

(19)日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-161935

(43)公開日 平成8年(1996)6月21日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 B 3/30		Z		
C 0 8 L 83/04	L R X			
C 0 9 K 11/06		Z 9280-4H		
H 0 5 B 33/22				

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 7 頁)

(21)出願番号	特願平6-298220	(71)出願人	390008866 サンスター技研株式会社 大阪府高槻市明田町7番1号
(22)出願日	平成6年(1994)12月1日	(72)発明者	西川 俊 大阪府高槻市明田町7番1号 サンスター 技研株式会社内
		(72)発明者	小野 美穂子 大阪府高槻市明田町7番1号 サンスター 技研株式会社内
		(74)代理人	弁理士 青山 葆 (外1名)

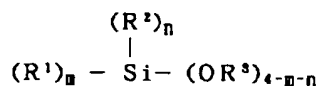
(54)【発明の名称】 有機分散型エレクトロルミネッセンス素子および該素子に用いる反射絶縁層用組成物

## (57)【要約】

【目的】 本発明は、有機分散型EL素子に使用される、チタン酸バリウム粉を配合した場合の問題点を解決した反射絶縁層用組成物を提供する。

【構成】 本発明の反射絶縁層用組成物は、上記チタン酸バリウム粉に含まれる不純物イオンの捕捉剤並びに式:

【化1】



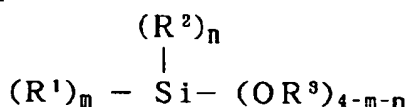
(式中、R<sup>1</sup>は炭素数6以上の疎水性炭化水素基; R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, mおよびnは明細書の記載と同意義である)で示される疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のエステルまたはエーテル化物からなる群から選ばれる1種を添加したことを特徴とする。

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 有機分散型エレクトロルミネッセンス素子に用いる、高誘電性バインダー樹脂に無機質高誘電材料粉としてチタン酸バリウム粉を配合して成る反射絶縁層用組成物において、上記チタン酸バリウム粉に含まれる不純物イオンの捕捉剤並びに式：

【化1】



(式中、 $R^1$ は炭素数6以上の疎水性炭化水素基； $R^2$ は炭素数1～4の炭化水素基またはビニル基； $R^3$ はメチル基、エチル基またはイソプロペニル基； $m$ は1～3および $n$ は0～2で、 $1 \leq m+n \leq 3$ である)で示される疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のアルキル、アルケニルもしくはフェニルのエステルまたはエーテル化物からなる群から選ばれる少なくとも1種を添加したことを特徴とする反射絶縁層用組成物。

【請求項2】 不純物イオンの捕捉剤単独使用の場合の添加量が、チタン酸バリウム粉100重量部に対して0.1～10重量部である請求項1に記載の反射絶縁層用組成物。

【請求項3】 疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のエステルまたはエーテル化物から選ばれる少なくとも1種単独使用の場合の添加量が、チタン酸バリウム粉100重量部に対して0.001～5重量部である請求項1に記載の反射絶縁層用組成物。

【請求項4】 不純物イオンの捕捉剤と、疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のエステルまたはエーテル化物から選ばれる少なくとも1種とを併用して添加した請求項1に記載の反射絶縁層用組成物。

【請求項5】 不純物イオンの捕捉剤が、元素周期律表ⅠⅤ族A、B、Ⅴ族A、B、Ⅵ族A、Ⅶ族AおよびⅦ族の金属から選ばれる少なくとも1種を構成元素とし、かつ水酸基を有する無機イオン交換体から選ばれる少なくとも1種である請求項1、2または4に記載の反射絶縁層用組成物。

【請求項6】 背面電極、反射絶縁層、発光層および透明電極の順でこれらを積層したことから成る有機分散型エレクトロルミネッセンス素子において、反射絶縁層に請求項1に記載の反射絶縁層用組成物を用いたことを特徴とする有機分散型エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は有機分散型エレクトロルミネッセンス(EL)素子および該素子に用いる反射絶縁

2

層用組成物、更に詳しくは、有機分散型EL素子中の反射絶縁層に無機質高誘電材料粉としてチタン酸バリウム粉を配合した場合の問題点、すなわち、湿気が存在した場合にも該チタン酸バリウム粉に含まれる不純物イオンによる誘電特性の悪化並びに寿命低下を有効に抑制もしくは防止した反射絶縁層用組成物および該反射絶縁層用組成物を用いた有機分散型EL素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 有機分散型EL素子は一般に、背面電極、反射絶縁層、発光層および透明電極の順でこれらを積層したことから構成されるもので、通常、その中で反射絶縁層には、各種の高誘電性バインダー樹脂に無機質高誘電材料粉を配合して成る組成物が用いられている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記無機質高誘電材料粉としてチタン酸バリウム粉を配合した場合に、下記のような問題点のあることが分かった。

i)チタン酸バリウム粉は誘電率が高く、価格的にもリーズナブルで使用し易いため広く用いられているが、湿気が存在すると、著しく誘電特性が悪化する。原因はチタン酸バリウム粉に含まれる不純物イオン(アルカリ金属イオンやアルカリ土類金属イオン)が上記バインダー樹脂中に溶出することによると考えられる。

【0004】 ii)有機分散型EL素子(単にEL素子という)は、構造簡単、製造がたやすく安価で、しかも軽薄のフィルム状で屈曲にも耐える簡便な発光素子として優れた特長を有しているが、寿命に問題があり、経時による輝度、発光効率の低下が最大の問題とされている。この寿命は、EL素子へ浸入する水分による悪影響とされ、EL素子への防湿パッケージング、乾燥剤乃至吸湿剤の封入、高誘電性バインダー樹脂の吸湿性低下、蛍光体粒子の防湿コーティングといった多くの手立が検討され、採用されているが、まだ十分とは云えず、技術課題の中心である。

【0005】 iii)水分による寿命低下の機構は完全には解明されている訳ではないが、発光層中の蛍光体粒子の劣化とされ、その劣化の一つの要因として吸湿による反射絶縁層および発光層の誘電損失係数( $\tan \delta$ )の増大も重要な因子と考えられる。 $\tan \delta$ の増大は加えられた電気エネルギーの熱転換を意味し、即ち温度上昇をもたらす、ひいてはEL素子の寿命低下につながるものと考えられる。

【0006】 ところで、この $\tan \delta$ の低下のため、高誘電性バインダー樹脂はそれ自体の $\tan \delta$ の低下と、上記吸湿性の低下に傾注され、現在その限界に近いレベルまで到達している。しかし、いくら吸湿性を下げ、 $\tan \delta$ を下げて、チタン酸バリウム粉を配合すれば、わずかな吸湿によってそれらの努力を無にするが如き、著しい $\tan \delta$ の上昇が生じてしまうことが分かった。当然ながら、EL素子の内でも新しいパッケージレスタイプと呼

3

ばれる湿気遮断用密封外装シールを省略したタイプでは特に悪影響が大きい。また、吸湿による誘電率、 $\tan \delta$ の増大は、輝度、発光効率、寿命などの特性低下の他、駆動用インバーターの負荷の増大につながり、インバータートラブルの原因にもなる。

【0007】

【課題を解決するための手段】そこで、本発明者らは、かかる吸湿によって生ずる誘電特性の悪化並びに寿命低下の問題点を解決すべき検討を試みたところ、以下に示す知見を見出した。

1) 予めチタン酸バリウム粉を純水でよく洗浄して水溶性の不純物イオンを除去することにより、ある程度の改善が認められるが(十分満足できる程度には及ばない)、この手段では洗浄、濾過および乾燥の工程を必要とし、コストアップ、しかも洗浄後の排水処理が必然的に要求される。

2) これに代えて、高純度のチタン酸バリウム粉を使用することも有効ではあるが、チタン酸バリウムは一般に、酸化バリウムと酸化チタンの混合焼成によって製造されるので、未反応の酸化バリウムの残存、あるいはこれら原料として高純度品を使用しなければならないといった新たな問題が生じ、コストも高くなる。

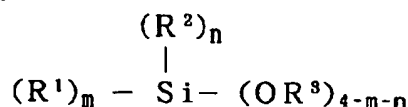
【0008】3) 一方、不純物イオンの不溶化物を形成するため、硫酸根( $\text{SO}_4^{2-}$ )、炭酸根( $\text{CO}_3^{2-}$ )、重炭酸根( $\text{HCO}_3^-$ )、シュウ酸根( $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$ )、リン酸根( $\text{PO}_4^{3-}$ )、ピロリン酸根( $\text{P}_2\text{O}_7^{4-}$ )、ホウ酸根( $\text{BO}_3^{3-}$ )の酸根を含む酸や塩類;エチレンジアミン四酢酸(EDTA)、アセチルアセトン、オキシシン、サリチル酸等のキレート化剤;フタル酸、トリメリット酸、ピロメリット酸、マロン酸、マレイン酸、アジピン酸等の多価カルボン酸;ステアリン酸、パルミチン酸等の脂肪酸などの各種物質を添加することを検討したところ、それなりの効果を示すものも認められたが、いずれも十分な効果とはいえない。この理由として、これらの物質によりアルカリ土類金属イオンは不溶化できても、アルカリ金属イオンの不溶化には無力であることが原因と考えられる。しかも、効果が見られても、その物質自体の悪影響が懸念される。

4) さらに検討を加えたところ、特定の不純物イオンの捕捉剤並びに特定の疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のエステルまたはエーテル化物からなる群から選ばれる少なくとも1種を添加すれば、これら添加物質自体の悪影響もなく、所期目的の効果が十分に達成されることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0009】すなわち、本発明は、(1)有機分散型EL素子に用いる、高誘電性バインダー樹脂に無機質高誘電材料粉としてチタン酸バリウム粉を配合して成る反射絶縁層用組成物において、上記チタン酸バリウム粉に含まれる不純物イオンの捕捉剤並びに式:

4

【化2】



(式中、 $\text{R}^1$ は炭素数6以上の疎水性炭化水素基(たとえば脂肪族飽和炭化水素基、脂肪族不飽和炭化水素基、芳香族炭化水素基および脂環族炭化水素基に属する炭素数6以上、好ましくは8以上の疎水性基); $\text{R}^2$ は炭素数1~4の炭化水素基またはビニル基; $\text{R}^3$ はメチル基、エチル基またはイソプロペニル基; $m$ は1~3および $n$ は0~2で、 $1 \leq m+n \leq 3$ である)で示される疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のアルキル、アルケニルもしくはフェニルのエステルまたはエーテル化物からなる群から選ばれる少なくとも1種を添加したことを特徴とする反射絶縁層用組成物、および(2)背面電極、反射絶縁層、発光層および透明電極の順でこれらを積層したことから成る有機分散型EL素子において、反射絶縁層に前記反射絶縁層用組成物を用いたことを特徴とする有機分散型EL素子を提供するものである。

【0010】本発明で用いる不純物イオンの捕捉剤(以下、捕捉剤群という)としては、それ自体による悪影響がなく、かつアルカリ金属イオンやアルカリ土類金属イオンを捕捉不溶化するものであればいずれであってもよく、たとえば元素周期律表I V族A(Ti、Zr、Hfなど)、I V族B(Sn、Pbなど)、V族A(V、Nb、Taなど)、V族B(P、As、Sb、Biなど)、VI族A(Mo、Wなど)、VII族A(Mnなど)およびVIII族(Fe、Co、Niなど)の金属から選ばれる少なくとも1種を構成元素とし、かつ水酸基を有する無機イオン交換体であって、具体的にはアンチモン酸、錳酸、ニオブ酸、鉄酸などの含水酸化物類が挙げられ、これらの少なくとも1種を使用する。また、不純物イオンはアルカリ金属~アルカリ土類金属イオンの陽イオンだけでなく当然、対として陰イオンが存在する。陰イオンが水酸化物イオン( $\text{OH}^-$ )である場合は陰イオンの捕捉は必要としないが(アルカリ金属~アルカリ土類金属イオンが水素イオン( $\text{H}^+$ )に交換され、対の $\text{OH}^-$ とで水になるから)、しばしばハロゲンイオン等の陰イオンが共存することがあり、この場合該陰イオンの捕捉も必要となる。ハロゲンイオン等の陰イオンの捕捉には、上述の金属の内、Bi、Zr、Tiなどの含水酸化物類が挙げられ、これらはハロゲンイオンなどの陰イオンを $\text{OH}^-$ に交換する。これらの陽イオンの交換体と陰イオンの交換体は同時に合わせて使用することも可能であり同時併用が安全で好ましい。かかる捕捉剤群は、たとえば東亜合成化学工業(株)製の商品名「IXE(イグゼ)」シリーズとして市販されている。

【0011】また上記捕捉剤群に代えてまたは併用して

5

用いる前記式の疎水性炭化水素基含有アルコキシシラン化合物および該アルコキシシラン化合物のエステルまたはエーテル化物(以下、疎水性シラン化合物群という)は、チタン酸バリウム粉の粒子表面へ吸着もしくは反応することにより、(a)その疎水性炭化水素基がチタン酸バリウム粉の粒子表面を疎水化せしめ、該粒子近傍への水分の接近を防止するか、もしくは(b)該粒子表面を被覆せしめ、該粒子内部からの新たな不純物イオンの溶出を防止することが推察される。

【0012】かかる疎水性シラン化合物群の具体例としては、トリデシルトリメトキシシラン、トリデシルメチルジメトキシシラン、ウンデシルトリメトキシシラン、ウンデシルメチルジメトキシシラン、ジウンデシルジメトキシシラン、オクタデシルジメチルメトキシシラン、オクタデシルトリメトキシシラン、オクタデシルメチルジエトキシシラン、デシルトリメトキシシラン、エイコシルトリメトキシシラン、ヘキシルトリメトキシシラン、ヘキシルメチルジメトキシシラン、2-エチルヘキシルトリメトキシシランなどのアルキルアルコキシシラン類;オクテニルトリメトキシシラン、ヘキセニルメチルジメトキシシランなどのアルケニルアルコキシシラン類;フェニルトリエトキシシラン、ベンジルトリエトキシシラン、フェネチルトリエトキシシラン、1-ブチルフェネチルジメチルメトキシシランなどの芳香環を有するアルコキシシラン類;ピシクロヘプテニルトリエトキシシラン、ピシクロヘプテニルメチルジメトキシシラン、シクロヘキシルジメチルエトキシシラン、(シクロヘキシルメチル)トリメトキシシランなどの脂環系炭化水素基を有するアルコキシシラン類;およびこれらアルコキシシラン類の基の一部をアルキルエステルまたはエーテル、アルケニルエステルまたはエーテル、フェニルエステルまたはエーテルの基で置換したものが挙げられ、これらの少なくとも1種を使用されてよい。なお、疎水性シラン化合物群の作用効果に近い特性を有する物質として、長鎖アルキル基を含有する有機チタン酸エステル類、たとえばイソプロピルトリイソステアロイルチタネート、テトラステアロキシチタン、チタニウムステアレート等があり、疎水性シラン化合物群には及ばないものの一応の効果を示す。

【0013】本発明に係る反射絶縁層用組成物は、通常の高誘電性バインダー樹脂にチタン酸バリウム粉を配合し、さらに上記捕捉剤群および疎水性シラン化合物群から選ばれる少なくとも1種を添加した系で構成され、通常、適当な有機溶剤(たとえばN,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、エチルセロソルブアセテート、ジメチルスルホキシド、N-メチル-2-ピロリドン、γ-ブチロラクトン等)の溶液で使用に供する。

【0014】上記高誘電性バインダー樹脂としては、有機分散型E.L.素子用のバインダー樹脂であればいずれで

6

あってもよく、たとえばポリビニルアルコール、セルロースもしくはその誘導体類(0-2,3-ジヒドロキシプロピルセルロースなど)、プルランなどのヒドロキシル基を多数有するポリマーのシアノエチル化物;シアノエチル化アクリル系モノマーのホモもしくはコポリマー;フッ化ビニリデンのホモもしくはコポリマー(フッ化ビニリデン系フッ素ゴム);その他シアノエチル化プルランエーテル等が挙げられる。上記チタン酸バリウム粉の配合量は通常、高誘電性バインダー樹脂100部(重量部、以下同様)(樹脂分)に対して50~500部の範囲で選定すればよい。

【0015】上記捕捉剤群の単独使用の場合の添加量は通常、チタン酸バリウム粉100部に対して0.1~10部、好ましくは0.5~5部の範囲で選定すればよい。0.1部未満では、吸湿による誘電特性悪化の改善が不十分となり、また10部を越えた場合では、チタン酸バリウム粉の含有量が相対的に低下し、元来目的とする高誘電率が低下する傾向にある。また上記疎水性シラン化合物群の単独使用の場合では、その添加量は捕捉剤群の場合より少なくてもよく、通常チタン酸バリウム粉100部に対して0.001~5部、好ましくは0.05~2部の範囲で選定すればよい。0.001部未満では、効果が不十分であり、また5部を越えると、誘電率の低下が大きくなる傾向にある。なお、捕捉剤群と疎水性シラン化合物群は、それぞれの単独使用より、両者併用の方が少量の添加量で顕著な効果を示すことからより好ましい。さらに、これら捕捉剤群や疎水性シラン化合物群による効果は、当該反射絶縁層用組成物への添加配合によるのではなく、予めチタン酸バリウム粉を該捕捉剤群および/または疎水性シラン化合物群を含む水あるいは有機溶剤の溶液乃至懸濁液で処理しておく方法によっても達成しうるが、そのための別工程を要するため経済的に不利である。

【0016】本発明に係る有機分散型E.L.素子は、背面電極、反射絶縁層、発光層および透明電極の順でこれらを積層したことから構成され、その中の反射絶縁層に上記反射絶縁層用組成物を用いたことを特徴とする。その具体的な製造法としては、たとえば(i)背面電極に上記反射絶縁層用組成物(有機溶剤溶液)を塗布し、加熱乾燥して反射絶縁層を形成した後、該反射絶縁層上に高誘電性バインダー樹脂と蛍光体粉末(たとえば硫化亜鉛やセレン化亜鉛に、活性化剤としてCu、Mn、Al、Cl、Br等を添加して焼成したもの)の有機溶剤溶液を塗り重ね、加熱乾燥して発光層を形成してから、透明電極を重ね合わせて熱圧着するか、または(ii)上記(i)と同様な方法で、背面電極と透明電極のそれぞれに、反射絶縁層と発光層を別々に形成した後、背面電極の反射絶縁層と透明電極の発光層とが面するように両電極を熱圧着する方法等が挙げられる。

【0017】

【発明の効果】以上の構成から成る本発明によれば、有機分散型E.L.素子における反射絶縁層にチタン酸バリウム粉を配合した場合の問題点：高温下での不純物イオンによる誘電特性の悪化並びに寿命低下の解決のために、単に捕捉剤群や疎水性シラン化合物群を添加するといった簡便な方法を採用すればよく、これは従来からの有機分散型E.L.素子における重要課題を解決する上で、極めて意義があるといえる。

## 【0018】

【実施例】次に実施例および比較例を挙げて、本発明をより具体的に説明する。

## 実施例1～18および比較例1～9

下記表1～3に示す部数で配合した成分を、3本ロールで混合分散して反射絶縁層用組成物を得る。この反射絶縁層用組成物を1mm厚のアルミニウム板上にドクターブレードを用いて塗布し、120℃の熱風オーブンにて2時間乾燥させた約100μm厚のフィルムの表面にアルミニウム蒸着して電極を形成し、次いで恒温恒湿槽(20℃/60%RHまたは40℃/90%RH)内で、LCZメーターを用い周波数1KHzでの誘電率およびtan

δを測定し、結果を表1～3に併記する。  
【0019】なお、各表中の配合成分の内容は以下の通りであり、またバインダー樹脂AおよびBについてはエチルセロソルブアセートの33%溶液、バインダー樹脂CおよびDについてはジメチルホルムアミドの33%

溶液で配合されており、表中の「100」部はこの33%溶液を対象とする。

## 【0020】バインダー樹脂

A:シアノエチル化アクリルモノマーグラフトフッ素ゴム系バインダー樹脂、サンスター技研(株)製「RD-4058B」

B:フッ化ビニリデン共重合系フッ素ゴム、ダイキン工業(株)製「ダイエルG-201」

C:シアノエチル化アクリルポリマー系バインダー樹脂、サンスター技研(株)製「M-6164E」

D:シアノエチル化プルラン系バインダー樹脂

## チタン酸バリウム粉

A:富士チタン工業(株)製「BT-100P」

B:同上(株)製「BT-100M」

C:同上(株)製「HPBT-1」

## 無機イオン交換体

A:東亜合成化学工業(株)製「IXE-600」、Sb, Bi系

B:同上(株)製「IXE-633」、Sb, Bi系

## 20 疎水性シラン化合物群

A:オクタデシルトリメトキシシラン

B:メタクリロイルウンデシルトリメトキシシラン

## 【0021】

## 【表1】

実施例		1	2	3	4	5	6	7	8	9
成 分	バインダー樹脂A	100	100	100	100	100	—	—	—	100
	“ B	—	—	—	—	—	100	—	—	—
	“ C	—	—	—	—	—	—	100	—	—
	“ D	—	—	—	—	—	—	—	100	—
	チタン酸バリウム粉A	100	100	100	—	—	100	100	100	100
	“ B	—	—	—	100	—	—	—	—	—
	“ C	—	—	—	—	100	—	—	—	—
	無機イオン交換体A	2	—	2	2	2	2	2	2	0.2
	“ B	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	疎水性シラン化合物群									
	A	—	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.05
	B	—	—	—	—	—	—	—	—	—
誘電率	20℃/60%RH	72	70	62	76	66	51	85	90	83
	40℃/90%RH	108	142	68	81	71	54	95	122	105
tan δ	20℃/60%RH	0.048	0.076	0.027	0.031	0.027	0.022	0.045	0.062	0.033
	40℃/90%RH	0.740	0.411	0.074	0.082	0.066	0.046	0.088	0.102	0.111

【表2】

9

10

成 分	実施例	10	11	12	13	14	15	16	17	18
バインダー樹脂A		100	100	100	100	100	100	100	100	100
" B		—	—	—	—	—	—	—	—	—
" C		—	—	—	—	—	—	—	—	—
" D		—	—	—	—	—	—	—	—	—
チタン酸バリウム粉A		100	100	100	100	100	100	100	100	100
" B		—	—	—	—	—	—	—	—	—
" C		—	—	—	—	—	—	—	—	—
無機イオン交換体A		0.5	1	5	2	2	2	2	—	2
" B		—	—	—	—	—	—	—	2	—
疎水性シラン化合物群										
A		0.5	0.5	0.5	0.05	0.1	0.5	1	0.5	—
B		—	—	—	—	—	—	—	—	0.5
誘電率	20℃/60%RH	69	69	57	68	67	61	55	70	72
	40℃/90%RH	80	79	64	87	80	75	62	92	102
tan δ	20℃/60%RH	0.028	0.026	0.023	0.034	0.029	0.026	0.023	0.024	0.032
	40℃/90%RH	0.092	0.088	0.067	0.095	0.075	0.071	0.047	0.068	0.065

【表3】

20

成 分	比較例	1	2	3	4	5	6	7	8	9
バインダー樹脂A		100	100	100	—	—	—	100	100	100
" B		—	—	—	100	—	—	—	—	—
" C		—	—	—	—	100	—	—	—	—
" D		—	—	—	—	—	100	—	—	—
チタン酸バリウム粉A		100	—	—	100	100	100	66	—	—
" B		—	100	—	—	—	—	—	66	—
" C		—	—	100	—	—	—	—	—	66
誘電率	20℃/60%RH	75	71	74	55	88	96	51	55	53
	40℃/90%RH	1673	243	325	106	543	2230	245	123	147
tan δ	20℃/60%RH	0.057	0.044	0.039	0.021	0.028	0.056	0.045	0.040	0.046
	40℃/90%RH	1.261	1.122	1.045	0.061	1.305	2.454	0.533	0.103	0.989

【0022】上記表1～3の結果から、チタン酸バリウム粉配合の反射絶縁層用組成物において、無機イオン交換体(捕捉剤群)と疎水性シラン化合物群のそれぞれ単独または併用して添加することにより、特に40℃/90%RHの多湿下において誘電特性の改善に著しい効果を示すことが認められる。

【0023】実施例19～24および比較例10～13上記実施例1～4, 6, 7または比較例1, 2, 5, 7の反射絶縁層用組成物と、下記表4, 5に示す部数の配合成分からなる発光層用組成物の組合せで、以下に示す手順に従って、有機分散型EL素子を作製し、初期と老化後の発光特性を評価した。

#### 手順

酸化インジウム-酸化錫(ITO)を蒸着加工してガラス板上に透明電極を形成し、次いで発光層用組成物をスクリーン印刷し、120℃の熱風乾燥器中で30分間乾燥

して発光層を形成し、次いで反射絶縁層用組成物を同様にスクリーン印刷し、120℃で90分間乾燥して反射絶縁層を形成した後、この反射絶縁層上にアルミニウムを真空蒸着して背面電極とすることにより、有機分散型EL素子を作製する。

40 【0024】次に、この有機分散型EL素子を100V-500Hzの正弦波で、輝度計と電力計を用い、初期の輝度(Cd/m<sup>2</sup>)と発光効率(Cd/W)を測定する。さらに、有機分散型EL素子を防湿パッケージレスのむきだしの状態で40℃/90%RHの高湿度下にて、75V-500Hzの正弦波で200時間連続点灯した後の輝度および発光効率を初期の場合と同一条件にて測定することにより、有機分散型EL素子の劣化状態を調べる。結果を表4, 5に併記する。なお、発光層に用いたバインダー樹脂は前記反射絶縁層のものと同意義であり、そして蛍光体粉は米国シルバニア社製の「タイプ#50」

11

12

(硫化亜鉛)および溶剤はバインダー樹脂AおよびBの場合がエチルセロソルブアセテート、バインダー樹脂Cの場合がジメチルホルムアミド、すなわち、実施例19～23と比較例10, 11, 13がエチルセロソルブアセテ\*

\*ートで、実施例24と比較例12がジメチルホルムアミドを用いた。

【0025】

【表4】

実施例		19	20	21	22	23	24
<u>反射絶縁層用組成物</u>							
実施例No.		1	2	3	4	6	7
<u>発光層用組成物</u>							
バインダー樹脂A		10	10	10	10	—	—
" B		—	—	—	—	10	—
" C		—	—	—	—	—	10
蛍光体粉		30	30	30	30	30	30
溶 剤		15	15	15	15	15	15
初 期	輝度	75	77	73	79	65	81
	発光効率	1.01	1.06	1.12	1.21	1.02	1.26
老化後	輝度	64	64	67	70	61	75
	発光効率	0.94	0.96	1.06	1.11	0.95	1.14

【表5】

比較例		10	11	12	13
<u>反射絶縁層用組成物</u>					
比較例No.		1	2	5	7
<u>発光層用組成物</u>					
バインダー樹脂A		10	10	—	10
" C		—	—	10	—
蛍光体粉		30	30	30	30
溶 剤		15	15	15	15
初 期	輝度	81	82	86	60
	発光効率	0.84	0.86	0.89	0.93
老化後	輝度	46	43	39	49
	発光効率	0.75	0.75	0.68	0.79

【0026】上記表4, 5の結果から、実施例1～4, 6, 7の反射絶縁層用組成物(捕捉剤群や疎水性シラン化合物群の添加)を使用した有機分散型EL素子は、かかる添加成分を含まない比較例1, 2, 5, 7の反射絶縁層

用組成物を使用した場合と比べて、高温下での連続点灯後の輝度、発光効率において優れていることが認められる。